# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2002-012404

(43) Date of publication of application: 15.01.2002

(51)Int.CI.

CO1B

CO1B 3/48 H01M 8/06

HO1M

(21)Application number : 2000-193120

(71)Applicant: TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing:

27.06.2000

(72)Inventor: NUMATA KOICHI

**IGUCHI SATORU** 

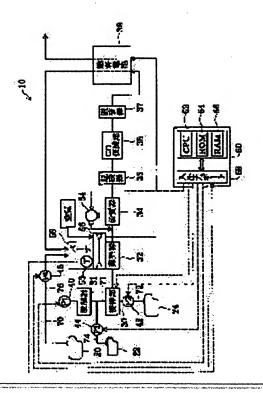
YAMAGUCHI SUSUMU

KUNITAKE KAZUHISA

# (54) REFORMING APPARATUS AND REFORMING METHOD

# (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a desired uniform mixture of a raw fuel and water at a certain ratio in conducting steam reforming reaction by using hydrophobic liquid hydrocarbon as a raw fuel. SOLUTION: Gasoline stored in a gasoline tank 20 and water stored in a water tank 24 are supplied each through a certain flow passage to an agitator 30, mixed uniformly there, evaporated in an evaporator 32, and then reacted for reforming in a reformer 34. Before agitation, ethanol stored in an ethanol tank 22 is added to gasoline supplied to the agitator 30. Since gasoline and water are mixed together with ethanol, the mixture is kept under a fully uniform condition during evaporation in the evaporator 32.



## **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

'[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

\* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

#### DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[The technical field to which invention belongs] About a reformer and the reforming method, in detail, this invention reforms hydrocarbon system field fuel using a steam-reforming method, and relates to the reformer and the reforming method of generating hydeogen-rich gas.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, generation of hydeogen-rich gas has been performed by the steam-reforming reaction, using a hydrocarbon or a hydrocarbon system compound as original fuel. As original fuel for generating hydeogen-rich gas, in case the natural gas which makes methane a principal component, alcohol, such as a methanol, and various things, such as a gasoline, are used and a reforming reaction generates hydeogen-rich gas, according to the original fuel to be used, the reforming catalyst and reforming reaction temperature which are used in the case of a reforming reaction are chosen suitably. In case hydeogen-rich gas is generated using such a reforming catalyst, original fuel and water are mixed at a predetermined rate, and after this mixed original fuel and mixed water have evaporated, it supplies to a predetermined reforming machine equipped with a reforming catalyst. For example, the technology which a partial oxidation reaction is advanced with a steam-reforming reaction within a reforming machine, and generates hydeogen-rich gas is indicated by JP,11-79703,A, using a gasoline as original fuel.

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, although the reforming machine was supplied after evaporating original fuel and water when liquid hydrocarbon, such as a gasoline, was used as original fuel, there was a possibility that original fuel might become uneven [ the mixed rate of original fuel and water ], and might produce un-arranging in the mixture of gas which consists of the original fuel supplied to a reforming machine as it is a hydrophobic liquid like the above-mentioned gasoline, and water. That is, hydrophobic liquid hydrocarbon is difficult for fully maintaining the homogeneity of both mixed state until both actually evaporate, even if 1 \*\* has the property to begin separation immediately even if it mixes with water to homogeneity, a request of both comes out comparatively in advance of evaporation and it mixes uniformly. If the mixed state is uneven in case both evaporate, the mixed rate of the original fuel and water (steam) in the mixture of gas obtained by evaporation also becomes uneven, and the mixed rate of original fuel and water will vary from a desired rate in the mixture of gas with which a reforming reaction is presented. [0004] The mixed state of original fuel and water originates in a bird clapper that it is uneven in the case of evaporation, in the above-mentioned mixture of gas supplied in the reforming machine, when the rate of water becomes low rather than a desired rate partially, the activity of the steam-reforming reaction which advances with a reforming vessel becomes inadequate partially, or there is a possibility that generation of soot may increase within a reforming machine, moreover, if the rate of water becomes high partially in the above-mentioned mixture of gas, the steam partial pressure in the generated hydeogen-rich gas will become high even to the grade of not wanting, partially, or or in also advancing a partial oxidation reaction with a steam-reforming reaction in a reforming machine The amount of oxygen becomes superfluous relatively because the amount of original fuel becomes less than the amount of requests, and there is a possibility of not a partial oxidation reaction but a complete oxidation reaction advancing, and carrying out the temperature up of the reforming catalyst even to non-wanting temperature.

[0005] When the reformer and the reforming method of this invention solved such a problem and performed a steam-reforming reaction, using hydrophobic liquid hydrocarbon as original fuel, they were made for the purpose of changing the mixed rate of original fuel and water into a desired uniform state, and took the next composition.

[A The means for solving a technical problem, and its operation and effect] Hydrophobic liquid hydrocarbon is used for the 1st reformer of this invention as original fuel. It is the reformer which generates hydeogen-rich gas from the

aforementioned field fuel by the steam-reforming reaction. The reforming machine which is equipped with the reforming catalyst which promotes the aforementioned steam-reforming reaction, runs the aforementioned steam-reforming reaction, and generates the aforementioned hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel and water,

### \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## **CLAIMS**

# [Claim(s)]

[Claim 1] It is the reformer which is equipped with the following and characterized by the aforementioned mixed means mixing collectively the quality of a mixed state stable ghost which can secure the homogeneity of the mixed state of the aforementioned field fuel and water in case the aforementioned field fuel and water are mixed, until the aforementioned field fuel and water which were mixed with this mixed means are evaporated with the aforementioned evaporation means. The reforming machine which is the reformer which generates hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel by the steam-reforming reaction, is equipped with the reforming catalyst which promotes the aforementioned steam-reforming reaction, using hydrophobic liquid hydrocarbon as original fuel, runs the aforementioned steam-reforming reaction, and generates the aforementioned hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel and water It is a mixed means by which have a supply means to supply the aforementioned field fuel and water to the aforementioned reforming machine, and predetermined comes out comparatively and the aforementioned supply means mixes the aforementioned field fuel and water uniformly. An evaporation means to make the original fuel and water which were mixed uniformly evaporate in advance of supply in the aforementioned reforming vessel by the aforementioned mixed means

[Claim 2] The reformer which is characterized by providing the following and which generates hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel by the steam-reforming reaction, using hydrophobic liquid hydrocarbon as original fuel. The reforming machine which is equipped with the reforming catalyst which promotes the aforementioned steam-reforming reaction, runs the aforementioned steam-reforming reaction, and generates the aforementioned hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel and water. It is a mixed means by which have a supply means to supply the aforementioned field fuel and water to the aforementioned reforming machine, and predetermined comes out comparatively and the aforementioned supply means mixes the aforementioned field fuel and water uniformly. An evaporation means to make the original fuel and water which were mixed uniformly evaporate in advance of supply in the aforementioned reforming vessel by the aforementioned mixed means. An addition means to add in either [at least] the aforementioned field fuel or the water in case the aforementioned field fuel and water are mixed for the quality of a mixed state stable ghost which can secure the homogeneity of the mixed state of the aforementioned field fuel and water which were mixed with the aforementioned mixed means are evaporated with the aforementioned evaporation means

[Claim 3] Either [ at least ] the aforementioned field fuel which is equipped with the following and mixed with the aforementioned mixed means, or the water is the reformer characterized by to have mixed beforehand the quality of a mixed state stable ghost which can secure the homogeneity of the mixed state of the aforementioned field fuel and water until the aforementioned field fuel and water which were mixed with the aforementioned mixed means are evaporated with the aforementioned evaporation means. The reforming machine which is the reformer which generates hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel by the steam-reforming reaction, is equipped with the reforming catalyst which promotes the aforementioned steam-reforming reaction, using hydrophobic liquid hydrocarbon as original fuel, runs the aforementioned steam-reforming reaction, and generates the aforementioned hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel and water It is a mixed means by which have a supply means to supply the aforementioned field fuel and water to the aforementioned reforming machine, and predetermined comes out comparatively and the aforementioned supply means mixes the aforementioned field fuel and water uniformly. An evaporation means to make the original fuel and water which were mixed uniformly evaporate in advance of supply in the aforementioned reforming vessel by the aforementioned mixed means

[Claim 4] The water which was further equipped with a water storage means to be a reformer according to claim 3 and to store the aforementioned water, and was stored in the aforementioned water storage means is a reformer characterized by having mixed beforehand the aforementioned quality of a mixed state stable ghost.

[Claim 5] There is no claim 1 characterized by being a polar high liquid organic compound, and the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is the reformer of a publication 4 either.

[Claim 6] The aforementioned polar high liquid organic compound is a reformer according to claim 5 characterized by being the liquid used as an organic solvent.

[Claim 7] The molecule which constitutes the aforementioned liquid organic compound is a reformer according to claim 5 characterized by the carbon number which is equipped with a hydrophilic group and a hydrophobic group and constitutes the aforementioned hydrophobic group being five or less.

[Claim 8] It is the reformer which is further equipped with a original fuel storage means to be a reformer according to claim 3 and to store the aforementioned field fuel, and is characterized by the original fuel which the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is a polar high liquid organic compound, and was stored in the aforementioned field fuel storage means having mixed beforehand the aforementioned quality of a mixed state stable ghost so that it may become 1% or more of content.

[Claim 9] There is no claim 1 with enough few contents of the matter which checks the aforementioned reforming reaction, and the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is the reformer of a publication 8 either. [Claim 10] The matter which checks the aforementioned reforming reaction is a reformer according to claim 9 which are sulfur and one [ at least ] matter of Lynn.

[Claim 11] In the aforementioned reforming machine, there is no claim 1 which is the matter which generates hydrogen by the aforementioned steam-reforming reaction, and the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is the reformer of a publication 10 either.

[Claim 12] The aforementioned field fuel is a gasoline, there is no aforementioned quality of a mixed state stable ghost of one claim which is ethanol, and it is the reformer of a publication 11 either.

[Claim 13] The process which is the reforming method which generates hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel by the steam-reforming reaction, and predetermined comes out comparatively and mixes the (a) aforementioned field fuel and water uniformly, using hydrophobic liquid hydrocarbon as original fuel (b) The reforming catalyst which promotes the aforementioned steam-reforming reaction for the aforementioned field fuel and water which were evaporated at the process which makes the original fuel and water which were uniformly mixed at the aforementioned (a) process evaporate, and the (c) aforementioned (b) process The aforementioned steam-reforming reaction is gone on using the original fuel and water equipped with the above which are the reforming method and carried out [ aforementioned ] evaporation, and it has the process which generates the aforementioned hydeogen-rich gas. the aforementioned (a) process It is characterized by being the process which combines the quality of a mixed state stable ghost which can secure the homogeneity of the mixed state of the aforementioned field fuel and water, and is mixed in case the aforementioned field fuel and water are mixed until the aforementioned field fuel and water which were mixed are evaporated at the aforementioned (b) process.

[Claim 14] The reforming method characterized by providing the following The process which is the reforming method which generates hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel by the steam-reforming reaction, and predetermined comes out comparatively and mixes the (a) aforementioned field fuel and water uniformly, using hydrophobic liquid hydrocarbon as original fuel (b) The process which makes the original fuel and water which were uniformly mixed at the aforementioned (a) process evaporate (c) The process supplied to a reforming machine equipped with the reforming catalyst which promotes the aforementioned steam-reforming reaction for the aforementioned field fuel and water which were evaporated at the aforementioned (b) process In the aforementioned reforming machine, the aforementioned steam-reforming reaction is gone on using the original fuel and water which carried out [ aforementioned ] evaporation, and it has the process which generates the aforementioned hydeogen-rich gas. (d) The aforementioned (a) process (a-1) Until the aforementioned field fuel and water which were mixed are evaporated at the aforementioned (b) process The process which adds the quality of a mixed state stable ghost which can secure the homogeneity of the mixed state of the aforementioned field fuel and water in either [ at least ] the aforementioned field fuel or the water in case the aforementioned field fuel and water are mixed [Claim 15] The process which is the reforming method which generates hydeogen-rich gas from the aforementioned field fuel by the steam-reforming reaction, and predetermined comes out comparatively and mixes the (a) aforementioned field fuel and water uniformly, using hydrophobic liquid hydrocarbon as original fuel (b) The reforming catalyst which promotes the aforementioned steam-reforming reaction for the aforementioned field fuel and water which were evaporated at the process which makes the original fuel and water which were uniformly mixed at the aforementioned (a) process evaporate, and the (c) aforementioned (b) process The aforementioned steam-reforming

reaction is gone on using the original fuel and water equipped with the above which are the reforming method and carried out [ aforementioned ] evaporation. Either [ at least ] the aforementioned field fuel which is equipped with the process which generates the aforementioned hydeogen-rich gas, and is mixed in the aforementioned (a) process, or the

water It is characterized by having mixed beforehand the quality of a mixed state stable ghost which can secure the homogeneity of the mixed state of the aforementioned field fuel and water until the aforementioned field fuel and water which were mixed at the aforementioned (a) process are evaporated at the aforementioned (b) process.

[Claim 16] There is no claim 13 characterized by being a polar high liquid organic compound, and the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is the reforming method of a publication 15 either.

[Claim 17] The aforementioned polar high liquid organic compound is the reforming method according to claim 16 characterized by being the liquid used as an organic solvent.

[Claim 18] The molecule which constitutes the aforementioned liquid organic compound is the reforming method according to claim 16 characterized by the carbon number which is equipped with a hydrophilic group and a hydrophobic group and constitutes the aforementioned hydrophobic group being five or less.

[Claim 19] The aforementioned field fuel which it is the reforming method according to claim 15, and the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is a polar high liquid organic compound, and is mixed in the aforementioned (a) process is the reforming method characterized by having mixed beforehand the aforementioned quality of a mixed state stable ghost so that it may become 1% or more of content.

[Claim 20] There is no claim 13 with enough few contents of the matter which checks the aforementioned reforming reaction, and the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is the reforming method of a publication 19 either.

[Claim 21] The matter which checks the aforementioned reforming reaction is the reforming method according to claim 20 which are sulfur and one [ at least ] matter of Lynn.

[Claim 22] In the aforementioned reforming machine, there is no claim 13 which is the matter which generates hydrogen by the aforementioned steam-reforming reaction, and the aforementioned quality of a mixed state stable ghost is the reforming method of a publication 21 either.

[Claim 23] The aforementioned field fuel is a gasoline, there is no aforementioned quality of a mixed state stable ghost of 13 claim which is ethanol, and it is the reforming method of a publication 22 either.

[Claim 24] Fuel cell equipment which is fuel cell equipment equipped with the fuel cell which obtains electromotive force according to electrochemical reaction in response to supply of the fuel gas containing hydrogen, and the oxidization gas containing oxygen, and uses a claim 1 or the aforementioned hydeogen-rich gas which is equipped with the reformer of a publication 12 either and the aforementioned reformer generates as the aforementioned fuel gas.

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## **DESCRIPTION OF DRAWINGS**

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is explanatory drawing showing the outline of the composition of the fuel cell equipment 10 which is one suitable example of this invention.

[Drawing 2] The result which investigated the influence of ethanol to stabilization of the emulsion of an isooctane and water is expressed.

[Drawing 3] It is explanatory drawing showing the outline of the composition of the fuel cell equipment 110 of the 2nd example.

[Description of Notations]

- 10,110 -- Fuel cell equipment 20 -- Gas tank
- 22 -- Ethanol tank
- 24 -- Water tank
- 30 -- Stirring section
- 31, 35, 37 -- Desulfurizer
- 32 -- Evaporator
- 34 -- Reforming machine
- 36 -- CO reduction section
- 38 -- Fuel cell
- 40, 42, 44, 46 -- Pump
- 50 -- Temperature sensor
- 54 -- Blower
- 56 -- Compressor
- 58 -- Burner
- 60 -- Control section
- 62 -- CPU
- 64 -- ROM
- 66 -- RAM
- 68 -- Input/output port
- 70, 71, 72, 74, 76 -- Passage
- 120 -- Field fuel tank

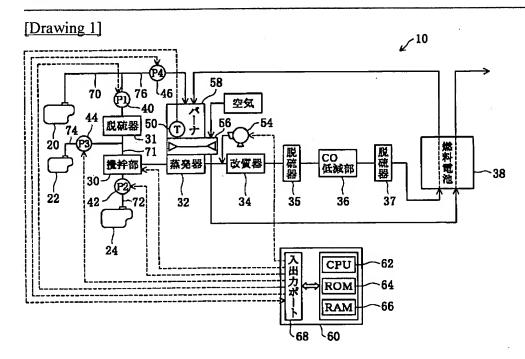
# [Translation done.]

# \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

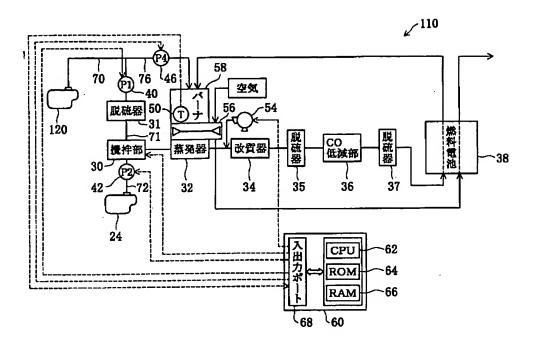
## **DRAWINGS**



[Drawing 2]

経過時間 A (エタノール10%添加) B (対象系)   10秒 変化無し 変化無し 30秒 油相分離開始(相厚 1mm) 油相分離促進(相厚 3mm) ほぼ完全に油相分離(5mm)   60秒 上層白濁相が濃くなる 油相分離開始(相厚 1mm)			
20秒 変化無し 油相分離促進(相厚 3mm)   30秒 変化無し   60秒 上層白濁相が濃くなる	経過時間	A (エタノール10%誘加)	B (茶象埃)
	20秒 30秒 60秒	変化無し 変化無し 上層白渦相が濃くなる	油相分離促進(相厚 3mm)

# [Drawing 3]



[Translation done.]

### (19)日本国特許庁(JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2002-12404 (P2002-12404A)

(43)公開日 平成14年1月15日(2002.1.15)

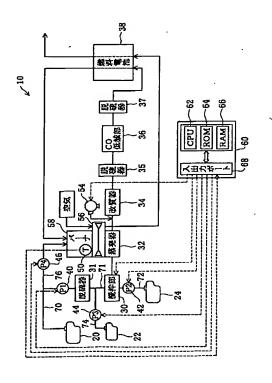
(51) Int.Cl. <sup>7</sup>		識別記号	FΙ			テーマ:	<b>I-</b> N (
C01B	3/38		C 0 1 B	3/38		4	G 0 4 0
	3/48			3/48		5	H026
H 0 1 M	8/06		H 0 1 M	8/06		G 5	H 0 2 7
:	8/10			8/10			
		,	審査請求	未請求	請求項の数24	OL	(全 15 頁)
(21)出願番号	•	特願2000-193120(P2000-193120)	(71) 出願人		207 自動車株式会社		
(22)出願日		平成12年6月27日(2000.6.27)			豊田市トヨタ町	1 番地	
:		•	(72)発明者				
	•			爱知県 <b>竖</b> 車株式会	豊田市トヨタ町: 会社内	1 番地	トヨタ自動
			(72)発明者	井口	哲		
				爱知県望	豊田市トヨタ町∶ 会社内	1 番地	トヨタ自動
		'	(74)代理人	1000968	317		•
				弁理士	五十嵐 孝雄	例	3名)
							M db W ledt 2
			I				最終頁に続く

### (54) 【発明の名称】 改質装置および改質方法

### (57) 【要約】

【課題】 疎水性の液体炭化水素を原燃料として用いて 水蒸気改質反応を行なう際に、原燃料と水との混合割合 を所望の均一状態にする。

【解決手段】 ガソリンタンク20に貯蔵されるガソリンと、水タンク24に貯蔵される水とは、それぞれ所定の流路によって攪拌部30に供給されてここで均一に混合され、蒸発器32で気化された後、改質器34における改質反応に供される。ここで、攪拌部30に供給されるガソリンは、攪拌に先立って、エタノールタンク22に貯蔵されるエタノールが添加される。ガソリンと水とは、エタノールと共に混合されることにより、蒸発器32で気化されるまでの間、その混合状態が充分に均一に保たれる。



#### 【特許請求の範囲】

疎水性の液体炭化水素を原燃料として用 い、水蒸気改質反応によって前記原燃料から水素リッチ ガスを生成する改質装置であって、

前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、前記水 蒸気改質反応を進行して前記原燃料および水から前記水 素リッチガスを生成する改質器と、

前記原燃料および水を前記改質器に供給する供給手段と

前記供給手段は、

前記原燃料および水を、所定の割合で均一に混合する混

前記混合手段によって均一に混合された原燃料および水 を、前記改質器への供給に先立って気化させる気化手段 とを備え、

前記混合手段は、前記原燃料および水を混合する際に、 該混合手段で混合された前記原燃料および水が前記気化 手段で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合 状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物 質を、併せて混合することを特徴とする改質装置。

【請求項2】 疎水性の液体炭化水素を原燃料として用 い、水蒸気改質反応によって前記原燃料から水素リッチ ガスを生成する改質装置であって、

前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、前記水 蒸気改質反応を進行して前記原燃料および水から前記水 素リッチガスを生成する改質器と、

前記原燃料および水を前記改質器に供給する供給手段と を備え、

前記供給手段は、

前記原燃料および水を、所定の割合で均一に混合する混 合手段と、

前記混合手段によって均一に混合された原燃料および水 を、前記改質器への供給に先立って気化させる気化手段

前記混合手段で混合された前記原燃料および水が前記気 化手段で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混 合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化 物質を、前記原燃料および水を前記混合手段で混合する 際に、前記原燃料および水のうちの少なくとも一方に添 加する添加手段とを備えることを特徴とする改質装置。

【請求項3】 疎水性の液体炭化水素を原燃料として用 い、水蒸気改質反応によって前記原燃料から水素リッチ ガスを生成する改質装置であって、

前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、前記水 蒸気改質反応を進行して前記原燃料および水から前記水 素リッチガスを生成する改質器と、

前記原燃料および水を前記改質器に供給する供給手段と を備え、

前記供給手段は、

前記原燃料および水を、所定の割合で均一に混合する混

合手段と、

前記混合手段によって均一に混合された原燃料および水 を、前記改質器への供給に先立って気化させる気化手段 とを備え、

前記混合手段で混合される前記原燃料および水のうちの 少なくとも一方は、前記混合手段で混合された前記原燃 (紅衣) 料および水が前記気化手段で気化されるまでの間、前記 原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可 能な混合状態安定化物質を、予め混合していることを特 徴とする改質装置。

【請求項4】 請求項3記載の改質装置であって、 前記水を貯蔵する水貯蔵手段をさらに備え、

前記水貯蔵手段に貯蔵された水は、前記混合状態安定化 物質を予め混合していることを特徴とする改質装置。

【請求項5】 前記混合状態安定化物質は、極性の高い 液体有機化合物であることを特徴とする請求項1ないし 4いずれか記載の改質装置。

前記極性の高い液体有機化合物は、有機 溶媒として用いられる液体であることを特徴とする請求 項5記載の改質装置。

【請求項7】 前記液体有機化合物を構成する分子は、 親水基と疎水基とを備え、前記疎水基を構成する炭素数 が5以下であることを特徴とする請求項5記載の改質装

請求項3記載の改質装置であって、 【請求項8】 前記原燃料を貯蔵する原燃料貯蔵手段をさらに備え、 前記混合状態安定化物質は、極性の高い液体有機化合物 であって、

前記原燃料貯蔵手段に貯蔵された原燃料は、前記混合状 態安定化物質を、1%以上の含有量となるよう予め混合 していることを特徴とする改質装置。

前記混合状態安定化物質は、前記改質反 【請求項9】 応を阻害する物質の含有量が充分に少ない請求項1ない し8いずれか記載の改質装置。

【請求項10】 前記改質反応を阻害する物質は、硫 黄、リンのうちの少なくとも一方の物質である請求項9 記載の改質装置。

【請求項11】 前記混合状態安定化物質は、前記改質 器において、前記水蒸気改質反応によって水素を生成す る物質である請求項1ないし10いずれか記載の改質装

【請求項12】 前記原燃料はガソリンであり、前記混 合状態安定化物質はエタノールである請求項1ないし.1 1いずれか記載の改質装置。

疎水性の液体炭化水素を原燃料として 【請求項13】 用い、水蒸気改質反応によって前記原燃料から水素リッ チガスを生成する改質方法であって、(a) 前記原燃料 および水を、所定の割合で均一に混合する工程と、

(b) 前記(a) 工程で均一に混合された原燃料および 水を気化させる工程と、(c)前記(b)工程で気化し

た前記原燃料および水を、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備える改質器に供給する工程と、(d)前記改質器において、前記気化した原燃料および水を利用して前記水蒸気改質反応を進行し、前記水素リッチガスを生成する工程とを備え、

前記(a)工程は、混合された前記原燃料および水が前記(b)工程で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、前記原燃料および水を混合する際に併せて混合する工程であることを特徴とする改質方法。

【請求項14】 疎水性の液体炭化水素を原燃料として 用い、水蒸気改質反応によって前記原燃料から水素リッ チガスを生成する改質方法であって、(a)前記原燃料 および水を、所定の割合で均一に混合する工程と、

(b)前記(a)工程で均一に混合された原燃料および水を気化させる工程と、(c)前記(b)工程で気化した前記原燃料および水を、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備える改質器に供給する工程と、(d)前記改質器において、前記気化した原燃料および水を利用して前記水蒸気改質反応を進行し、前記水素リッチガスを生成する工程とを備え、

前記(a)工程は、

(a-1)混合された前記原燃料および水が前記(b)工程で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、前記原燃料および水を混合する際に、前記原燃料および水のうちの少なくとも一方に添加する工程を備える改質方法。

【請求項15】 疎水性の液体炭化水素を原燃料として 用い、水蒸気改質反応によって前記原燃料から水素リッ チガスを生成する改質方法であって、(a)前記原燃料 および水を、所定の割合で均一に混合する工程と、

(b) 前記(a) 工程で均一に混合された原燃料および水を気化させる工程と、(c) 前記(b) 工程で気化した前記原燃料および水を、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備える改質器に供給する工程と、(d) 前記改質器において、前記気化した原燃料および水を利用して前記水蒸気改質反応を進行し、前記水素リッチガスを生成する工程とを備え、

前記(a) 工程において混合される前記原燃料および水のうちの少なくとも一方は、前記(a) 工程で混合された前記原燃料および水が前記(b) 工程で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、予め混合していることを特徴とする改質方法。

【請求項16】 前記混合状態安定化物質は、極性の高い液体有機化合物であることを特徴とする請求項13ないし15いずれか記載の改質方法。

【請求項17】 前記極性の高い液体有機化合物は、有機溶媒として用いられる液体であることを特徴とする請

求項16記載の改質方法。

【請求項18】 前記液体有機化合物を構成する分子は、親水基と疎水基とを備え、前記疎水基を構成する炭素数が5以下であることを特徴とする請求項16記載の改質方法。

【請求項19】 請求項15記載の改質方法であって、前記混合状態安定化物質は、極性の高い液体有機化合物であって、

前記(a)工程において混合される前記原燃料は、前記 混合状態安定化物質を、1%以上の含有量となるよう予 め混合していることを特徴とする改質方法。

【請求項20】 前記混合状態安定化物質は、前記改質 反応を阻害する物質の含有量が充分に少ない請求項13 ないし19いずれか記載の改質方法。

【請求項21】 前記改質反応を阻害する物質は、硫 黄、リンのうちの少なくとも一方の物質である請求項2 0記載の改質方法。

【請求項22】 前記混合状態安定化物質は、前記改質器において、前記水蒸気改質反応によって水素を生成する物質である請求項13ないし21いずれか記載の改質方法。

【請求項23】 前記原燃料はガソリンであり、前記混合状態安定化物質はエタノールである請求項13ないし22いずれか記載の改質方法。

【請求項24】 水素を含有する燃料ガスと酸素を含有する酸化ガスの供給を受けて電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、

請求項1ないし12いずれか記載の改質装置を備え、 前記改質装置が生成する前記水素リッチガスを、前記燃 料ガスとして利用する燃料電池装置。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、改質装置および改質方法に関し、詳しくは、炭化水素系原燃料を水蒸気改質法を利用して改質し、水素リッチガスを生成する改質装置および改質方法に関する。

[0002]

【従来の技術】従来、原燃料として炭化水素あるいは炭化水素系化合物を用いて、水蒸気改質反応によって水素リッチガスの生成が行なわれてきた。水素リッチガスを生成するための原燃料としては、メタンを主成分とする天然ガスや、メタノールなどのアルコールや、ガソリンなど、種々のものが用いられており、改質反応により水素リッチガスを生成する際には、用いる原燃料に応じて、改質反応の際に利用する改質触媒や改質反応温度を適宜選択する。このような改質触媒を用いて水素リッチガスを生成する際には、原燃料と水とを所定の割合で混合し、この混合した原燃料と水とが気化した状態で、改質触媒を備える所定の改質器に対して供給する。例えば、特開平11-79703号公報には、原燃料として

ガソリンを用い、改質器内で水蒸気改質反応と共に部分酸化反応を進行させて水素リッチガスを生成する技術が記載されている。

#### [0003]

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、原燃料 としてガソリンなどの液体炭化水素を用いる場合には、 原燃料と水とを気化した上で改質器に供給するが、原燃 料が上記ガソリンのように疎水性の液体であると、改質 器に供給する原燃料と水とから成る混合気体において、 原燃料と水との混合割合が不均一となって不都合を生じ るおそれがあった。すなわち、疎水性の液体炭化水素 は、一旦は水と均一に混合しても直ちに分離を始めると いう性質を有しており、気化に先立って両者を所望の割 合で均一に混合しても、実際に両者が気化するときまで 両者の混合状態の均一性を充分に維持することは困難で ある。両者が気化する際に、その混合状態が不均一であ れば、気化によって得られる混合気体における原燃料と 水(水蒸気)との混合割合も不均一となり、改質反応に 供される混合気体において、原燃料と水との混合割合 が、所望の割合からばらついてしまうことになる。

【0004】気化の際に原燃料と水との混合状態が不均一となることに起因して、改質器内に供給された上記混合気体において、部分的に所望の割合よりも水の割合が低くなると、改質器で進行する水蒸気改質反応の活性が部分的に不十分となったり、改質器内で煤の生成が増大するおそれがある。また、上記混合気体において部分的に水の割合が高くなると、生成した水素リッチガス中の水蒸気分圧が部分的に非所望の程度にまで高くなったり、あるいは、改質器内において水蒸気改質反応と共に部分酸化反応も進行させる場合には、原燃料の量が所望量よりも少なくなることで酸素量が相対的に過剰となり、部分酸化反応ではなく完全酸化反応が進行して改質触媒が非所望の温度にまで昇温してしまうおそれがある。

【0005】本発明の改質装置および改質方法は、こうした問題を解決し、疎水性の液体炭化水素を原燃料として用いて水蒸気改質反応を行なう際に、原燃料と水との混合割合を所望の均一状態にすることを目的としてなされ、次の構成を採った。

#### [0006]

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】本発明の第1の改質装置は、疎水性の液体炭化水素を原燃料として用い、水蒸気改質反応によって前記原燃料から水素リッチガスを生成する改質装置であって、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、前記水蒸気改質反応を進行して前記原燃料および水から前記水素リッチガスを生成する改質器と、前記原燃料および水を前記改質器に供給する供給手段とを備え、前記供給手段は、前記原燃料および水を、所定の割合で均一に混合する混合手段と、前記混合手段によって均一に混合された原燃料

および水を、前記改質器への供給に先立って気化させる 気化手段とを備え、前記混合手段は、前記原燃料および 水を混合する際に、該混合手段で混合された前記原燃料 および水が前記気化手段で気化されるまでの間、前記原 燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能 な混合状態安定化物質を、併せて混合することを要旨と する。

【0007】以上のように構成された本発明の第1の改 質装置は、疎水性の液体炭化水素である原燃料および水 を混合手段において混合する際に、混合手段で混合され た前記原燃料および水が気化手段で気化されるまでの 間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保する ことが可能な混合状態安定化物質を、併せて混合する。 混合手段において、混合状態安定化物質と共に、所定の 割合で均一に混合された原燃料と水は、気化手段で気化 された後、改質器に供給される。改質器は、水蒸気改質 反応を促進する改質触媒を備え、水蒸気改質反応を進行 して、原燃料および水から水素リッチガスを生成する。 【0008】また、本発明の第1の改質方法は、疎水性 の液体炭化水素を原燃料として用い、水蒸気改質反応に よって前記原燃料から水素リッチガスを生成する改質方 法であって、(a)前記原燃料および水を、所定の割合 で均一に混合する工程と、(b)前記(a)工程で均一

(c) 前記(b) 工程で気化した前記原燃料および水を、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備える改質器に供給する工程と、(d) 前記改質器において、前記気化した原燃料および水を利用して前記水蒸気改質反応を進行し、前記水素リッチガスを生成する工程とを備え、前記(a) 工程は、混合された前記原燃料および水が前記(b) 工程で気化されるまでの間、前記原燃料および水が前記(b) 工程で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、前記原燃料および水を混合する際に併せて混合する工程であることを要旨とする。

に混合された原燃料および水を気化させる工程と、

【0009】このような本発明の第1の改質装置および 改質方法によれば、水蒸気改質反応に供するのに先立っ て均一に混合された原燃料および水が気化されるまでの 間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保する ことが可能な混合状態安定化物質を、前記原燃料および 水を混合する際に併せて混合するため、気化の際に原燃 料と水との混合状態を均一に保つことができ、原燃料と 水(水蒸気)との混合状態が充分に均一な気体を気化に よって得て、水蒸気改質反応に供することができる。し たがって、改質器内で水蒸気改質反応が進行する際に、 部分的に水が不足したり水が過剰となったりすることが ない。すなわち、部分的に水が不足することに起因し て、改質器内で非所望量の煤が生じたり、水蒸気改質反 応が充分に進行しなくなることがない。また、部分的に 水が過剰となる(原燃料が相対的に不足する)ことに起 因して、生成した水素リッチガス中の水蒸気分圧が部分

的に非所望の程度にまで高くなったり、あるいは、改質 器内において水蒸気改質反応と共に部分酸化反応も進行 させる場合には、酸素量が相対的に過剰となることによ り、部分酸化反応ではなく完全酸化反応が進行して改質 触媒が非所望の温度にまで昇温してしまうことがない。

【0010】本発明の第2の改質装置は、疎水性の液体 炭化水素を原燃料として用い、水蒸気改質反応によって 前記原燃料から水素リッチガスを生成する改質装置であ って、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、 前記水蒸気改質反応を進行して前記原燃料および水から 前記水素リッチガスを生成する改質器と、前記原燃料お よび水を前記改質器に供給する供給手段とを備え、前記 供給手段は、前記原燃料および水を、所定の割合で均一 に混合する混合手段と、前記混合手段によって均一に混 合された原燃料および水を、前記改質器への供給に先立 って気化させる気化手段と、前記混合手段で混合された 前記原燃料および水が前記気化手段で気化されるまでの 間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保する ことが可能な混合状態安定化物質を、前記原燃料および 水を前記混合手段で混合する際に、前記原燃料および水 のうちの少なくとも一方に添加する添加手段とを備える ことを要旨とする。

【0011】以上のように構成された本発明の第2の改質装置は、疎水性の液体炭化水素である原燃料および水を混合手段において混合する際に、混合手段で混合された前記原燃料および水が気化手段で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、原燃料および水のうちの少なくとも一方に添加する。混合手段において、混合状態安定化物質と共に、所定の割合で均一に混合された原燃料と水は、気化手段で気化された後、改質器に供給される。改質器は、水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、水蒸気改質反応を進行して、原燃料および水から水素リッチガスを生成する。

【0012】なお、本発明の第2の改質装置において、前記原燃料および水を前記混合手段で混合する際に混合状態安定化物質を添加する動作は、原燃料および水を混合手段に供給するのに先立って、原燃料および水のうちの少なくとも一方に混合状態安定化物質を添加することしても良いし、原燃料および水とは別に、混合手段に混合状態安定化物質を供給し、混合手段で混合されつつある原燃料および水に対して混合状態安定化物質を添加することとしても良い。混合手段における混合の動作に連動して添加手段によって添加が行なわれ、添加された混合状態安定化物質が、混合手段において原燃料および水と共に混合されればよい。

【0013】本発明の第2の改質方法は、疎水性の液体 炭化水素を原燃料として用い、水蒸気改質反応によって 前記原燃料から水素リッチガスを生成する改質方法であ って、(a)前記原燃料および水を、所定の割合で均一 に混合する工程と、(b)前記(a)工程で均一に混合された原燃料および水を気化させる工程と、(c)前記(b)工程で気化した前記原燃料および水を、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備える改質器に供給する工程と、(d)前記改質器において、前記気化した原燃料および水を利用して前記水蒸気改質反応を進行し、前記水素リッチガスを生成する工程とを備え、前記

(a) 工程は、(a-1) 混合された前記原燃料および水が前記(b) 工程で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、前記原燃料および水を混合する際に、前記原燃料および水のうちの少なくとも一方に添加する工程を備えることを要旨とする。

【0014】このような本発明の第2の改質装置および 改質方法によれば、水蒸気改質反応に供するのに先立っ て均一に混合された原燃料および水が気化されるまでの 間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保する ことが可能な混合状態安定化物質を、前記原燃料および 水を混合する際に、前記原燃料および水のうちの少なく とも一方に添加するため、気化の際に原燃料と水との混 合状態を均一に保つことができ、原燃料と水(水蒸気) との混合状態が充分に均一な気体を気化によって得て、 水蒸気改質反応に供することができる。したがって、改 質器内で水蒸気改質反応が進行する際に、部分的に水が 不足したり水が過剰となったりすることに起因する既述 した不都合を生じることがない。

【0015】本発明の第3の改質装置は、疎水性の液体 炭化水素を原燃料として用い、水蒸気改質反応によって 前記原燃料から水素リッチガスを生成する改質装置であ って、前記水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、 前記水蒸気改質反応を進行して前記原燃料および水から 前記水素リッチガスを生成する改質器と、前記原燃料お よび水を前記改質器に供給する供給手段とを備え、前記 供給手段は、前記原燃料および水を、所定の割合で均一 に混合する混合手段と、前記混合手段によって均一に混 合された原燃料および水を、前記改質器への供給に先立 って気化させる気化手段とを備え、前記混合手段で混合 される前記原燃料および水のうちの少なくとも一方は、 前記混合手段で混合された前記原燃料および水が前記気 化手段で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混 合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化 物質を、予め混合していることを要旨とする。

【0016】以上のように構成された本発明の第3の改質装置は、混合手段で混合される疎水性の液体炭化水素である原燃料および水のうちの少なくとも一方は、混合手段で混合された前記原燃料および水が気化手段で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、予め混合している。混合手段において、混合状態安定化物質と共に、所定の割合で均一に混合された原燃料と水は、

気化手段で気化された後、改質器に供給される。改質器 は、水蒸気改質反応を促進する改質触媒を備え、水蒸気 改質反応を進行して、原燃料および水から水素リッチガ スを生成する。

【0017】本発明の第3の改質方法は、疎水性の液体 炭化水素を原燃料として用い、水蒸気改質反応によって 前記原燃料から水素リッチガスを生成する改質方法であって、(a)前記原燃料および水を、所定の割合で均一 に混合する工程と、(b)前記(a)工程で均一に混合 された原燃料および水を気化させる工程と、(c)前記 (b)工程で気化した前記原燃料および水を、前記水蒸 気改質反応を促進する改質触媒を備える改質器に供給す る工程と、(d)前記改質器において、前記気化した原 燃料および水を利用して前記水蒸気改質反応を進行し、 前記水素リッチガスを生成する工程とを備え、前記

(a) 工程において混合される前記原燃料および水のうちの少なくとも一方は、前記(a) 工程で混合された前記原燃料および水が前記(b) 工程で気化されるまでの間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保することが可能な混合状態安定化物質を、予め混合していることを要旨とする。

【0018】このような本発明の第3の改質装置および 改質方法によれば、水蒸気改質反応に供するのに先立っ て均一に混合された原燃料および水が気化されるまでの 間、前記原燃料および水の混合状態の均一性を確保する ことが可能な混合状態安定化物質を、混合される原燃料 および水のうちの少なくとも一方が予め混合しているた め、気化の際に原燃料と水との混合状態を均一に保つこ とができ、原燃料と水(水蒸気)との混合状態が充分に 均一な気体を気化によって得て、水蒸気改質反応に供す ることができる。したがって、改質器内で水蒸気改質反 応が進行する際に、部分的に水が不足したり水が過剰と なったりすることに起因する既述した不都合を生じるこ とがない。

【0019】本発明の第3の改質装置において、前記水 を貯蔵する水貯蔵手段をさらに備え、前記水貯蔵手段に 貯蔵された水は、前記混合状態安定化物質を予め混合し ていることとしてもよい。

【0020】このような構成とすれば、混合状態安定化物質を予め水に混合することにより、貯蔵手段に貯蔵する水の凝固点を下げ、寒冷地において改質装置を使用する場合にも、貯蔵手段内や貯蔵手段に接続する流路内において水が凍結してしまうのを防止することが可能となる。

【0021】本発明の第1ないし第3の改質装置、あるいは、本発明の第1ないし第3の改質方法において、前記混合状態安定化物質は、極性の高い液体有機化合物であることとしても良い。このような化合物は、疎水性の液体炭化水素とも水とも親和力が強く、上記混合状態安定化物質として有効に働く。

【0022】このような本発明の第1ないし第3の改質 装置、あるいは、本発明の第1ないし第3の改質方法に おいて、前記極性の高い液体有機化合物は、有機溶媒と して用いられる液体であることとしてもよい。有機溶媒 として用いられるような簡単な組成の液体を混合状態安 定化物質として用いれば、改質反応を行なう際に改質触 媒の活性を低下させたり、改質反応時に煤を生じるおそ れが少ない。また、比較的安価に本発明を実施すること が可能となる。

【0023】また、上記本発明の第1ないし第3の改質 装置、あるいは、本発明の第1ないし第3の改質方法に おいて、前記液体有機化合物を構成する分子は、親水基 と疎水基とを備え、前記疎水基を構成する炭素数が5以 下であることとしても良い。親水基と疎水基(親油基) とを備えることで、疎水性の液体炭化水素とも水とも充 分に混じり合い、両者の親和性を高めて上記混合状態安 定化物質として有効に働く。また、疎水基を構成する炭 素数が5以下であることにより、疎水基の疎水性が強く 成りすぎず、混合状態安定化物質を構成する分子全体 で、親水性と疎水性のバランスがとれ、混合状態安定化 物質として良好に働くことができる。さらに、親水基の 多くは酸素分子を含有しており、そのような親水基を備 える混合状態安定化物質を用いれば、改質反応の際に煤 の生成を抑える効果を得ることができる。

【0024】本発明の第3の改質装置において、前記原燃料を貯蔵する原燃料貯蔵手段をさらに備え、前記混合状態安定化物質は、極性の高い液体有機化合物であって、前記原燃料貯蔵手段に貯蔵された原燃料は、前記混合状態安定化物質を、1%以上の含有量となるよう予め混合していることとしてもよい。

【0025】また、本発明の第3の改質方法において、前記混合状態安定化物質は、極性の高い液体有機化合物であって、前記(a)工程において混合される前記原燃料は、前記混合状態安定化物質を、1%以上の含有量となるよう予め混合していることとしてもよい。

【0026】上記原燃料としては、主として疎水性の液体炭化水素からなり、さらに他種の化合物を含有するものを用いることとしてもよいが、その際には、予め原燃料が混合する混合状態安定化物質である極性の高い液体有機化合物は、単に微量成分として含まれていればよいのではなく、原燃料と水とを混合してから気化するまでの間、その混合状態を充分に安定化することができる量が含有されるよう構成する。

【0027】本発明の第1ないし第3の改質装置、あるいは、本発明の第1ないし第3の改質方法において、前記混合状態安定化物質は、前記改質反応を阻害する物質の含有量が充分に少ないこととしても良い。

【0028】このような構成とすれば、混合状態安定化物質を用いて原燃料と水との混合状態の均一性を確保することによって、改質反応が阻害されてしまうのを防止

することができる。したがって、原燃料と水との混合状態の均一性を確保することによる効果を充分に得ること ができる。

【0029】このような本発明の第1ないし第3の改質 装置、あるいは、本発明の第1ないし第3の改質方法に おいて、前記改質反応を阻害する物質は、硫黄、リンの うちの少なくとも一方の物質であることとしても良い。

【0030】また、本発明の第1ないし第3の改質装置、あるいは、本発明の第1ないし第3の改質方法において、前記混合状態安定化物質は、前記改質器において、前記水蒸気改質反応によって水素を生成する物質であることとしてもよい。

【0031】このような構成とすれば、原燃料と水との 混合状態の均一性を確保するために用いる混合状態安定 化物質もまた、原燃料と同様に、水蒸気改質反応による 水素の生成に寄与することができ、改質反応で得られる 水素リッチガス中に、混合状態安定化物質が残留してし まうのを抑えることができる。

【0032】また、本発明の第1ないし第3の改質装置、あるいは、本発明の第1ないし第3の改質方法において、前記原燃料はガソリンであり、前記混合状態安定化物質はエタノールであることとしても良い。

【0033】本発明の燃料電池装置は、水素を含有する燃料ガスと酸素を含有する酸化ガスの供給を受けて電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項1ないし12いずれか記載の改質装置を備え、前記改質装置が生成する前記水素リッチガスを、前記燃料ガスとして利用することを要旨とする。

【0034】以上のように構成された本発明の燃料電池装置は、請求項1ないし12いずれか記載の改質装置を備え、この前記改質装置が生成する水素リッチガスを燃料ガスとして利用すると共に、さらに酸素を含有する酸化ガスの供給を受けて、電気化学反応により起電力を得る

【0035】このように、本発明の第1ないし第3の改質装置が生成する水素リッチガスを燃料ガスとして用いることにより、水素などの成分の割合が常に安定した燃料ガスを用いて発電を行なうことができ、燃料電池からの出力を安定化し、燃料電池の性能を充分に確保することができる。

[0036]

【発明の実施の形態】以上説明した本発明の構成・作用を一層明らかにするために、以下本発明の実施の形態を、実施例に基づいて以下の順序で説明する。

- 1. 第1実施例の燃料電池装置10の全体構成
- 2. エマルジョン安定化剤について
- 3. 燃料電池装置の他の構成について

【0037】(1)第1実施例の燃料電池装置10の全体構成:図1は、本発明の好適な一実施例である燃料電池装置10の構成の概略を表わす説明図である。燃料電

池装置10は、ガソリンを貯蔵するガソリンタンク20、エタノールを貯蔵するエタノールタンク22、水を貯蔵する水タンク24、ガソリンと水との攪拌を行なう攪拌部30、燃焼ガスを発生するパーナ58、空気の圧縮を行なう圧縮機56、パーナ58と圧縮機56とを併設した蒸発器32、改質反応により燃料ガスを生成する改質器34、燃料ガス中の一酸化炭素(CO)濃度を低減するCO低減部36、ガソリンや水素リッチガスの脱硫を行なう脱硫器31、35、37、電気化学反応により起電力を得る燃料電池38を主な構成要素とする。これらの各部の動作は、制御部60により制御される。

【0038】燃料電池38は、固体高分子電解質型の燃料電池であり、電解質膜、アノード、カソード、およびセパレータとを備える単セルを複数積層して構成されている。電解質膜は、例えばフッ素系樹脂などの固体高分子材料で形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜である。アノードおよびカソードは、共に炭素繊維を織成したカーボンクロスにより形成されている。セパレータは、カーボンを圧縮してガス不透過とした緻密質カーボンなど、ガス不透過性を有する導電性部材により形成されている。また、このセパレータは、上記アノードおよびカソードとの間に、燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する。燃料電池38は、水素リッチガスである燃料ガスと圧縮空気である酸化ガスの供給を受けて、電気化学反応を進行することで起電力を発生する。

【0039】燃料電池装置10の各構成要素は次の通り接続されている。ガソリンタンク20は流路70によって脱硫器31に接続されている。脱硫器31は、ガソリンタンク20から供給されるガソリンに含まれる硫黄分の除去を行なう。硫黄分は、改質器34が備える触媒の活性を低下させて改質反応を阻害してしまうため、燃料電池装置10においては、改質器34に先だって脱硫器31を設けて、吸着によってガソリン中の硫黄分の除去を行なう。脱硫器31は、流路71によって攪拌部30に接続されている。ガソリンタンク20と脱硫器31とを接続する流路70の途中に設けられたポンプ40(図中のP1)は、原燃料であるガソリンの流量を調整して、所望量のガソリンを、脱硫器31を介して攪拌部30に供給する。ポンプ40は、制御部60に接続しており、制御部60によってその駆動状態が制御される。

【0040】上記脱硫器31と攪拌部30とを接続する流路71には、ポンプ44(P3)を備える流路74によって、エタノールタンク22がさらに接続されている。ポンプ44がエタノールの流量を調整することで、攪拌部30に供給されるガソリンに所望量のエタノールが混合される。水タンク24も同様に流路72によって攪拌部30に接続されている。この流路72の途中に設けられたポンプ42(P2)は、水の流量を調整して、所望量の水を攪拌部30に供給する。これらポンプ44,42は、制御部60に接続しており、制御部60に

よってその駆動状態が制御される。

【0041】エタノールが混合されたガソリン(以下、 エタノール添加ガソリンと呼ぶ)が通過する流路71 と、水が通過する流路72とは、攪拌部30において一 つに合流する。攪拌部30は、回転式のプロペラからな る撹拌装置を設けた攪拌漕を備えており、攪拌部30に 供給されたエタノール添加ガソリンと水とは、上記攪拌 漕内で上記撹拌装置によって攪拌され、両者が均一に混 合された混合液(エマルジョン)となる。攪拌部30は 蒸発器32に接続されており、攪拌部30で均一に攪拌 されたエタノール添加ガソリンと水との混合液は、所定 の流路によって蒸発器32に導かれる。攪拌部30は制 御部60に接続しており、制御部60によって、上記回 転式のプロペラの回転状態、すなわち攪拌部30で実行 される攪拌の動作が制御される。

【0042】蒸発器32は、上記エタノール添加ガソリ ンと水との混合液を気化させる。蒸発器32には、バー ナ58と圧縮機56とが併設されている。蒸発器32 は、バーナ58から供給される燃焼ガスによって、エタ ノール添加ガソリンと水とを沸騰、気化させる。ここ で、ガソリンタンク20と脱硫器31とを接続する上記 流路70は途中で分岐しており、分岐して成る流路76 は、バーナ58に接続している。この分岐した流路76 には、ポンプ46 (P4) が設けられており、これによ ってバーナ58に供給するガソリン量を調節している。 ポンプ46は、制御部60に接続しており、制御部60 によってその駆動状態が制御される。バーナ58には、 燃焼の燃料として、上記ガソリンに加えて、燃料電池3 8での電気化学反応で消費されずに残った燃料排ガスも 供給される。バーナ58は、ガソリンと燃料排ガスのう ち、後者を主として燃焼させるが、燃料排ガスだけでは 不足する場合や燃料電池装置10の起動時などには、ガ ソリンを用いた燃焼も行なう。バーナ58には温度セン サ50が設けられており、バーナ58の燃焼温度は、こ の温度センサ50の出力に基づいて所望の温度範囲とな るよう制御される。すなわち、温度センサ50は制御部 60に対して検出信号を出力し、制御部60はその情報 に基づいてポンプ46などに駆動信号を出力する。バー ナ58の燃焼ガスは、蒸発器32に移送される際に圧縮 機56が備えるタービンを回転させ、圧縮機56を駆動 する。圧縮機56は、燃料電池装置10の外部から空気 を取り込んでこれを圧縮し、この圧縮空気を、既述した 酸化ガスとして燃料電池38のカソード側に供給する。

【0043】蒸発器32と改質器34とは所定の流路で 接続されており、蒸発器32で得られた原燃料ガス、即 ちエタノール添加ガソリンと水蒸気との混合ガスは、こ の流路を介して改質器34に供給される。改質器34

 $CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$ 

 $CO + (1/2) O_2 \rightarrow 2 CO_2$ 

【0047】CO低減部36は、所定の流路によって脱

は、内部に改質触媒を備えており、供給されたエタノー ル添加ガソリンと水とからなる原燃料ガスを改質して水 素リッチな燃料ガスを生成する。改質触媒としては、白 金、パラジウム、ロジウムなどの貴金属、あるいはこれ らの合金を用いることができる。蒸発器32で気化した 上記混合ガスは、所定の髙温に昇温しているため、改質 器34では、混合ガスが蒸発器32から持ち込んだ熱を 利用して水蒸気改質反応が行なわれる。なお、本実施例 の改質器34では、水素リッチガスを生成する際に、水 蒸気改質反応に加えて、水素の生成を伴う部分酸化反応 も同時に進行する。部分酸化反応は、発熱反応であるた め、水蒸気改質反応が進行する際には、上記混合ガスが 蒸発器32から持ち込んだ熱に加えて、部分酸化反応で 生じた熱も利用される。この部分酸化反応に必要な酸素 を供給するために、改質器34には外部から空気を供給 するためのブロワ54が併設されている。ブロワ54 は、制御部60に接続しており、制御部60によってそ の駆動状態が制御される。

【0044】改質器34は、脱硫器35に接続されてい る。この脱硫器35は、改質器34で生成された水素リ ッチな燃料ガス中の硫黄分の除去を行なう装置である。 既述した脱硫器 3 1 によってガソリン中の脱硫が行なわ れるが、改質ガス中には微量の硫黄分が残留している。 改質触媒だけでなく、電気化学反応を促進する燃料電池 38中の触媒もまた、硫黄分によって反応が阻害される ため、このように脱硫器35を設けることで、燃料ガス 中の硫黄分のさらなる低減を図っている。

【0045】脱硫器35とCO低減部36とは所定の流 路によって接続されており、脱硫器35で硫黄分が低減 された水素リッチな燃料ガスは、CO低減部36に供給 される。既述した改質触媒を用いて主として水蒸気改質 反応によって水素リッチガスを生成する改質器34から 排出される燃料ガス中には、通常は一定量の一酸化炭素 (CO) が含まれる。CO低減部36は、この燃料ガス 中の一酸化炭素濃度を低減させる。固体高分子型の燃料 電池では、燃料ガス中に含まれる一酸化炭素が燃料電池 の備える触媒上に吸着し、アノードにおける反応を阻害 して燃料電池の性能を低下させてしまう性質を有するた め、このような構成を設けている。CO低減部36とし ては、シフト反応により一酸化炭素濃度を低減する一酸 化炭素変成部や、一酸化炭素の選択酸化反応により一酸 化炭素濃度を低減する一酸化炭素選択酸化部によって構 成することができる。シフト反応を以下に(1)式とし て、一酸化炭素の酸化反応を以下に(2)式として示 す。

[0046]

... (1)

... (2)

硫器37に接続されており、CO低減部36で一酸化炭

素濃度が低減された燃料ガスは、脱硫器37において再び硫黄分の除去が行なわれる。脱硫器37と、既述した脱硫器35は、脱硫器31と同様に吸着によって硫黄分の除去を行なっても良く、また、触媒反応によって硫黄分の除去を行なってもよい。また、脱硫器35および37は、必ずしも必要なわけではなく、改質器34から排出される燃料ガス中の硫黄分の濃度や、燃料電池38が燃料ガス中に許容する硫黄分の濃度に応じて、適宜設けることとすればよい。

【0048】脱硫器37と燃料電池38とは所定の流路によって接続されており、一酸化炭素濃度および硫黄分

 $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ 

 $(1/2) O_2 + 2 H^+ + 2 e^- \rightarrow H_2O$ 

 $H_2+ (1/2) O_2 \rightarrow H_2O$ 

【0050】以上の構成を有する燃料電池装置10は、エタノール添加ガソリンと水を原燃料として水素リッチガスを生成し、この水素リッチガスを燃料ガスとして用いて電気化学反応によって電力を供給することができる。なお、図1では図示を省略しているが、燃料電池38は、その内部に冷却水を循環させる冷却装置を備えている。燃料電池38内で上記した電気化学反応が進行する際には発熱を伴うが、この冷却装置によって、燃料電池38の運転温度を所定の温度範囲内に保っている。

【0051】また、図1に示した燃料電池装置10の蒸発器32では、熱源としてバーナ58を併設することとしたが、原燃料や水を気化させるための熱源は、ヒータなど他種の熱源を用いることとしても良い。さらに、攪拌部30の構成は、ガソリンと水とを均一に混合する(エマルジョン化する)ことができれば、他の構成であっても構わない。

【0052】制御部60は、マイクロコンピュータを中心とした論理回路として構成され、CPU62、ROM64、RAM66および入出力ポート68などからなる。ここで、CPUは、予め設定された制御プログラムに従って所定の演算などを実行し、ROMは、CPUで各種演算処理を実行するのに必要な制御プログラムや制御データなどが予め格納されており、RAMは、同じくCPUで各種演算処理を実行するのに必要な各種データが一時的に読み書きされ、入出力ポートは、種々のセンサなどからの信号を入力すると共に、CPUでの演算結果に応じて、燃料電池38の運転に関わる各部に駆動信号を出力するものであり、制御部60によって燃料電池装置10を構成する各部の駆動状態が制御される。

【0053】燃料電池38による発電を行なう際には、上記制御部60に対して、図示しない所定の入力部から要求動力(燃料電池38から出力すべき電力量)に関する指示が入力される。制御部60は、この入力された指示信号に基づいて、既述したポンプ40,42,44等に駆動信号を出力する。これによって、所定量のガソリンやエタノールおよび水が、脱硫器31や攪拌部30お

が低減された水素リッチな燃料ガスは、この流路を介して燃料電池38のアノード側に供給され、電気化学反応に利用される。また、先に説明した通り、燃料電池38のカソード側には、圧縮機56で圧縮された空気が供給されている。この圧縮空気は、酸化ガスとして燃料電池38のカソード側で電気化学反応に利用される。以下に、燃料電池38で進行する電気化学反応を示す。

(3) 式はアノード側における反応、(4) 式はカソード側における反応を示し、電池全体では(5) 式に示す 反応が進行する。

[0049]

... (3)

H<sub>2</sub>O ... (4)

... (5)

よび蒸発器32を経由して改質器34における改質反応 に供され、改質器34で生成された所定量の水素リッチ ガスが、一酸化炭素濃度および硫黄分が低減された後に 燃料電池38に供給されることで、燃料電池38から所 望量の電力が得られる。

【0054】図1に示した燃料電池装置10を電気自動 車などの移動体に搭載すれば、燃料電池装置10が備え る燃料電池38を、移動体の駆動エネルギ源として用い ることができる。例えば燃料電池装置10を電気自動車 に搭載する場合には、燃料電池38が発生する電気エネ ルギを、電気自動車の駆動軸を駆動するモータに供給す ればよい。このような電気自動車では、制御部60は、 要求動力に関する指示信号としてアクセル開度を入力 し、これに基づいて既述した各ポンプの駆動量を調節 し、改質反応に供する原燃料と水の量を決定する。これ により、所望の電気エネルギを発生するのに要する水素 を生成するのに必要な量のガソリンと、このガソリンを 改質するのに必要な量の水とが、蒸発器32等を経由し て改質器34に供給されて、所望量の水素が生成される と共に、この水素を供給される燃料電池装置10におい て所望量の電気エネルギが発生する。なお、本実施例で は、所望の電気エネルギを発生するのに要する水素を生 成するために、ガソリンの量と共にエタノールの量も調 節される。すなわち、攪拌部30よりも上流側でガソリ ンに混合されるエタノール量は、ガソリンタンク20かん ら供給されるガソリン量に対して所定の割合となるよう に制御される。エタノールの添加に関する構成は、本発 明の要部に対応するものであり、後に詳しく説明する。

【0055】(2) エマルジョン安定化剤について:本実施例の燃料電池装置10では、改質反応の原燃料であるガソリンと水とを攪拌部30において攪拌し、攪拌によってガソリンと水とが均一に混合された状態にして、これを蒸発器32に供給している。ここで、ガソリンと水とを攪拌部30で攪拌するのに先立って、ガソリンに対して所定の割合でエタノールを混合することにより、蒸発器32で気化する際のガソリンと水との混合状態の

均一性を充分に確保している。疎水性のガソリンと水とは互いに溶解することがなく、両者を攪拌によって均一化する場合には、溶液ではなく乳濁液(エマルジョン)を形成する。しかしながら、疎水性のガソリンと水とは、一旦均一に混合してエマルジョンを形成しても容易に分離してしまうため、両者を単に攪拌するだけでは、攪拌部30と蒸発器32でこれらを気化さる間に両者の分離が進行し、蒸発器32でこれらを気化さる際には、両者の混合状態が充分に均一ではなくなってしまうおそれがある。本実施例では、ガソリンにエタノールを混合することによって、攪拌部30で攪拌されてから蒸発器32で気化するまでの間、ガソリンと水とからなるエマルジョンの状態を安定化し、両者の混合状態の均一性を確保している。

【0056】エタノールは、極性の高い液体有機化合物であり、エタノール分子は、疎水基であるアルキル基( $-C_nH_{2n+1}$ )の一つエチル基と、親水基であるヒドロキシ基(-OH)とからなる。このように疎水基と親水基とを有するエタノールは、水にも、疎水性のガソリンにも、容易に溶解する。したがって、攪拌に先立ってガソリンに添加したエタノールは、ガソリンと水との間の親和性を高め、攪拌部30で両者を攪拌してエマルジョンを形成したときに、エマルジョンの状態をより安定化させる働きを有する。

【0057】ガソリンと水とのエマルジョンを安定化させるというエタノール添加の効果について調べた結果を以下に示す。図2は、ガソリンと水とのエマルジョンの安定化について調べるために行なったモデル実験の結果を表わす。ここでは、ガソリンの成分の一つであって、疎水性の液体炭化水素であるイソオクタンと、水とのエマルジョンの安定化に対するエタノールの影響を調べた結果を示す。なお、ガソリンは、多種類の炭化水素系化合物を含有しており、ガソリンを構成する各分子の分子量も一様ではないが、イソオクタンは、ガソリンに含まれるアルカンの中の代表的な炭化水素であり、実験的にはイソオクタンを用いることで、ガソリンのおよその性質を知ることができる。

【0058】図2において、実験Aは、イソオクタンと水にさらにエタノールを加えて形成されるエマルジョンに関する結果を、実験Bは、対象系として、エタノールを加えずイソオクタンと水だけから形成するエマルジョンに関する結果を表わす。すなわち、実験Aでは、100ml容量のバイアル瓶(密閉式ガラス容器)に5mlのイソオクタンと0.5mlのエタノールを加えて一旦混合し、その後20mlの蒸留水を加えた。また、実験Bでは、同じく100ml容量のバイアル瓶に5mlのイソオクタンと20mlの蒸留水とを加えた。両方のバイアル瓶を5秒間激しく(手動で)振盪して、内部の液体をエマルジョン化した後に静置し、静置後所定の経過時間(10秒、20秒、30秒、60秒、120秒)ご

とに各バイアル瓶中のエマルジョンにおける油相-水相 の分離状態を目視によって観察した。

【0059】イソオクタンと水とからなるエマルジョン を静置すると、次第に液体表面に油相(イソオクタンの 層)が形成され、やがて完全に油相と水相とが分離す る。図2に示した実験Aのように、エマルジョンの形成 に先立ってエタノールを添加すると、エマルジョン中の イソオクタンと水とが分離するのをエタノールが抑え、 エマルジョンが油相一水相に分離するのを遅らせること。 ができる。すなわち、実験Aでは、振盪後30秒までは エマルジョンの状態に変化が見られず、振盪後60秒を 経過すると液体表面に変化が生じ(イソオクタンと水と の分離が始まることで、エマルジョン上層の白濁相が濃 くなる)、振盪後120秒を経過すると油相が分離を始 めて、エマルジョンの表層部に相厚1mmの油相が形成 される。これに対し実験Bでは、振盪後10秒を経過し た時点ですでに相厚1mmの油相が形成され、振盪後2 0秒では油相の相厚が3mmに達し、振盪後30秒で油 相の相厚が5mmとなってほぼ完全に油相と水相とが分 離する。

【0060】このように、疎水性の液体炭化水素であるイソオクタンと水とをエマルジョン化する際にエタノールを添加することで、エマルジョンの安定性を向上させることができる。本実施例の燃料電池装置10においても、ガソリンにエタノール(例えば、図2に示した実験と同様に、ガソリン量に対して容量%で10%にあたる量のエタノール)を添加することで、ガソリンと水とを混合して成るエマルジョンの安定性を、同様に向上させることができる。

【0061】以上のように構成した本実施例の燃料電池 装置10によれば、攪拌部30に供給するのに先立って ガソリンにエタノールが添加されるため、蒸発器32に 供給するエマルジョンにおいてガソリンと水とが充分に 均一に混合された状態を保つことができ、ガソリンと水 とが所望の割合で混合された気体を蒸発器32で生成 し、改質反応に供することができる。したがって、改質 器34で改質反応が進行する際に、供給される水が不足 することによって、改質器34における煤の生成量が増 大したり、水蒸気改質反応の活性が不十分となって、水 蒸気改質反応が充分に行なわれないガスが改質器34か ら排出されたりすることがない。また、改質器34で改 質反応が進行する際に、供給される水が過剰となること によって(ガソリンが不足することによって)、非所望 の完全酸化反応が進行して改質触媒が非所望の高温にま で昇温したり(これによって改質触媒の劣化が促進され たり)、改質器34から排出される水素リッチガス中に 非所望量の水蒸気が含有されることがない。したがっ て、改質器34内における改質反応の進行状態を安定化 すると共に、改質反応によって得られる水素リッチガス 中の成分割合を、所望の割合で安定化することが可能と

なる。また、改質器 3 4 から排出される水素リッチガス中の成分割合を所望の割合で安定化することにより、この水素リッチガスを燃料ガスとして用いる燃料電池 3 8 の性能を、安定な状態で充分に確保することができ、燃料電池装置 1 0 全体のエネルギ効率を高めることができる。

【0062】なお、本実施例のように疎水性の液体炭化 水素であるガソリンにエタノールを添加する構成は、ガ ソリンと水とを混合して成るエマルジョンを長期にわた って(例えば、エマルジョンの状態で貯蔵できるほど長 期間) 安定化するものではない。例えば、図2に示した 実験結果においても、振盪(エマルジョン形成)した後 60秒から120秒後にはイソオクタンと水との分離が 開始される。しかしながら、エタノールを添加すること によりエマルジョンの安定状態が保たれるこのような時 間は、攪拌部30でガソリンと水とが攪拌されてから蒸 発器32でこれらが気化されるまでの間(攪拌部30と 蒸発器32とを接続する流路を通過する間)、均一な混 合状態を保つのに充分な時間である。したがって、攪拌 部30での攪拌に先立ってガソリンにエタノールを添加 することによって、蒸発器32で気化して成るガス中の ガソリンと水との混合状態を充分均一にし、改質器34 に供給されるガスにおけるガソリンと水との混合割合を 所望の値に保つことができる。

【0063】ここで、改質器34が備える既述した改質 触媒は、ガソリンだけでなく種々の炭化水素や炭化水素 化合物を改質する活性を有している。したがって、改質 反応に先立って原燃料に混合されたエタノールは、改質器34においてガソリンと同様に改質反応に供され、ガソリンだけでなくこのエタノールからも水素が生成される。そのため、ガソリンと水とのエマルジョンを安定化 させる安定化剤としてエタノールを混合しても、改質器34から排出される水素リッチガス中にエマルジョン安定化剤がそのまま残留することによって、改質器34よりも下流側の反応(CO低減部36における一酸化炭素 選択酸化反応や燃料電池装置10における電気化学反応)においてエマルジョン安定化剤が不都合を引き起こすことがない。

【0064】このように、エマルジョン安定化剤として加えるエタノールも改質反応によって水素を生成するため、燃料電池装置10の運転状態の制御においては、既述した動力要求に従って供給ガソリン量を制御する際に、ガソリンに対して所定の割合で加えるエタノールからも水素が生じることを考慮して、供給ガソリン量を決定すればよい。すなわち、動力要求に従って改質器34に供給すべきガソリンを決定する際に、例えばガソリン量の10%のエタノールをガソリンに混合する場合には、このエタノールからも所定量の水素が改質反応によって生成されることを考慮して、全体として所望量の水素が生成されるように、改質反応に供するガソリン量お

よびエタノール量を決定する。

【0065】なお、疎水性の液体と水とを混合して成る エマルジョンを安定化させる物質としては、従来から種 々の界面活性剤が知られており、これら通常知られる界 面活性剤を上記実施例におけるエタノールの代わりに用 いても、ガソリンと水とから成るエマルジョンの混合状 態を安定化し、ガソリンと水とが所望の割合で混合され た気体を改質器34に供給するという同様の効果を得る ことができるとともに、適当な界面活性剤を選択すれ ば、エタノールを用いる場合よりも上記エマルジョンを 安定化する効果を高めることが可能となる。しかしなが ら、本実施例のエタノールのように、有機溶媒として用 いられるような簡単な組成の液体をエマルジョン安定化 剤として用いれば、通常界面活性剤として知られる物質 を用いる場合に比べて、改質反応に不都合を生じるおそ れがなく、改質器内で煤が生じるのを抑え、エマルジョ ン安定化を安価に実現することができる。すなわち、一 般に界面活性剤は分子量が大きく構造が複雑であるた め、改質器34などが備える触媒の活性を低下させてし まうおそれがあるとともに、改質器において容易に煤を 生じてしまう。また、界面活性剤は、エタノールに比べ て一般に高価である。エタノールは、改質器34で触媒 活性に不都合を引き起こすことなく改質反応によって水 素を生成することが可能であると共に、その分子は酸素 を含有しているため、改質器34において煤を生じにく いという性質を有している。さらに、エタノールのよう に酸素を含有する分子を原燃料にさらに加えることで、 改質器34で生成される煤の総量を抑える効果を得るこ とができる。

【0066】また、上記実施例のようにエタノールのようなエマルジョン安定化剤を添加してガソリンと水との親和性を高め、両者を混合してエマルジョン化すると、エマルジョン中の粒子(水中に分散する油滴)の大きさを、より小さくすることができる。ガソリンと水との混合液を気化させる際には、沸点の低いガソリンが先に気化し、その後、より沸点の高い水が気化するが、上記混合液において両者が均一に混ざり合ってエマルジョンを形成していると、両者が分離している場合とは異なり、低沸点のガソリンが気化する際に高沸点の水の気化も促進するという性質を示す。本実施例のように、エタノールを添加してガソリンと水との親和性を高め、エマルジョン中の粒子をより微小化すると、水の気化を促進する効果を高め、気化に要するエネルギを削減する効果を得ることができる。

【0067】さらに、エタノールのようなエマルジョン 安定化剤を加えてガソリンと水との親和性を高めること によって、両者の攪拌によって形成されるエマルジョン が安定化するだけでなく、攪拌の動作の際にエマルジョンを形成しやすく(均一に混合しやすく)なる。したがって、攪拌部30において攪拌のために消費するエネル

ギを削減することができ、燃料電池装置 1 0 全体のエネルギ効率をより高めることができる。

【0068】なお、上記した説明では、疎水性の液体炭化水素量の10%に相当するエタノールを加えることとしたが、エマルジョンの安定化のために加えるエタノール量は、これに限るものではない。原燃料の改質を行なう際に、攪拌により液体炭化水素と水とを均一なエマルジョンにした後、気化を行なうまでの間、原燃料と水との混合状態を充分に均一に保つことができればよい。

【0069】ここで、ガソリンにエタノールを加える際に、加えるエタノール量が多いほど両者の親和性を高める効果が得られると考えられるため、加えるエタノールの割合をより大きくする構成も考えられる。ただし、ガソリンとエタノールとは、改質反応の最適条件(改質触媒の種類や改質温度)が完全に一致するわけではない。したがって、本実施例のように原燃料としてガソリンを主として用いて、ガソリンを改質する効率ができるだけ高くなるように改質触媒の種類を選択すると共に改質反応の温度を設定する場合には、エタノールの添加量は、上記エマルジョンの安定化の効果が充分に得られる範囲で、充分に抑えることが望ましい。これにより、最適条件ではない条件でエタノールの改質反応を行なうことで生じる不都合を抑えることができる。

【0070】なお、上記実施例では、エマルジョン安定 化剤としてエタノールを用いる場合について説明した が、疎水性の液体炭化水素と水とを混合して成るエマル ジョンの混合状態を安定化することができる物質であれ ば他種のものを用いることとしても良い。エマルジョン 安定化剤として用いることができるものとしては、極性 の高い液体有機化合物が考えられるが、その中でも、エ タノールと同様に有機溶媒として用いられるような比較 的簡単な組成の液体を用いれば、改質器34における煤 の形成を抑えたり、本発明を安価に実施することが可能 となる。また、エマルジョン安定化剤として用いる極性 の高い液体有機化合物としては、親水基と疎水基とを有 し、親水性と疎水性 (親油性) という両方の性質のバラ ンスがとれている化合物を、たとえば、他種のアルコー ルやエーテル、エステル、カルボン酸、カルボニル化合 物などの液体有機化合物の中から適宜選択すればよい。 すなわち、ヒドロキシ基 (-〇H)、カルボキシル基 (-COOH)、カルボニル基 (>CO) 等の親水基 と、所定の疎水基とを備える液体有機化合物であって、 親水基に起因する親水性と疎水基に起因する疎水性との バランスがとれており、疎水性の液体炭化水素とも水と も充分に親和性の高いものであれば、充分な効果を得る ことが可能である。ここで、疎水基であるアルキル基 (-C<sub>n</sub>H<sub>2n+1</sub>) と親水基であるヒドロキシ基(-O H) とからなるアルコールを用いる場合には、疎水性と 親水性とのバランスを考慮して、例えばアルキル基の有

する炭素数が5以下のものを選択するのが望ましい。ま

た、これらはいずれもその分子中に酸素原子(O)を含有しているため、これらを原燃料に混合することによって、既述したように改質器34内での煤の発生を抑える効果を得ることができる。

【0071】ここで、本実施例で改質反応の原燃料として用いたガソリンは、非常に多種類の化合物を含有しており、実際には、上記極性の高い液体有機化合物に相当する化合物を含有している。しかしながら、その含有量は微量であって、エマルジョンを安定化させ、蒸発器32で気化する際のガソリンと水との混合状態の均一性を充分に確保することはできない。本発明は、疎水性の液体原燃料と水とを混合した後、これらを気化させるまでの間、両者の混合状態の均一性を充分に確保できる程度に、極性の高い液体有機化合物を両者の混合に先立って加えることに特徴がある。疎水性の液体炭化水素と水との親和性を向上させるには、少なくとも、液体炭化水素の1%以上の量の上記極性の高い液体有機化合物を混合することが望ましい。

【0072】さらに、エマルジョン安定化剤として用いる液体有機化合物は、改質反応を阻害するおそれのある物質を含有しないことが望ましい。改質反応を阻害するおそれがある物質としては、例えば、改質触媒に吸着して触媒作用を阻害する硫黄やリンなどを挙げることができる。したがって、硫黄やリンを含有するスルホン酸やリン酸、アミン等の含有量が充分に低い物質をエマルジョン安定化剤として用いるならば、これらの物質に起因して改質反応が非所望の程度に阻害されてしまうのを防止することができる。

【0073】既述した実施例では、改質反応に供する原燃料としてガソリンを用いたが、原燃料はガソリンの他、改質反応によって水素リッチガスを生成可能な疎水性の液体炭化水素であれば、灯油や軽油など他種のものを用いる場合にも本発明は適用可能である。原燃料と水とを均一に混合してから気化するまでの間、両者の混合状態の均一性を確保できるエマルジョン安定化剤を加えることにより、既述した効果を得ることができる。

【0074】また、図1に示したように、既述した実施例では、エマルジョン安定化剤であるエタノールをガソリンに加えた後に、さらに水を加えて攪拌によりエマルジョン化しているが、攪拌に先立ってエマルジョン安定化剤を混合する際に、ガソリンにではなく水に混合することとしても良い。このような場合には、図1において、エタノールタンク22に連通してポンプ44を備える流路74は、脱硫器31と攪拌部30とを結ぶ流路71に接続させる代わりに、水タンク24と攪拌部30とを結ぶ流路72に接続することとすればよい。あるいは、上記エタノールタンク22に連通してポンプ44を備える流路74を、直接に攪拌部30に接続し、攪拌時に攪拌部30内に所定量のエタノールを供給することとしても良い。

【0075】さらに、上記実施例において、改質器34では、水蒸気改質反応と共に部分酸化反応を進行させることとしたが、水蒸気改質反応だけによって水素を生成することとしても良い。この場合には、改質器34に睦素(空気)を供給する必要はなく、改質器34にヒータなど所定の加熱装置を設け、水蒸気改質反応で要する熱を供給することとすればよい。少なくとも水蒸気改質反応を行ない、改質反応に先立って液体炭化水素原燃料に水を混合するならば、本発明を適用することで既述した効果を得ることができる。

【0076】なお、燃料電池装置10の始動時などには、原燃料に加える水の量を定常運転時よりも削減して、あるいは原燃料に水を加えることなく、改質器34において酸化反応を活発に進行させて改質器34の暖機運転を行なう場合が考えられる。このような場合には、原燃料と水との混合状態の均一性を定常運転時のように考慮する必要がない。したがって、このようなときには、ガソリンに対するエタノールの添加を行なわないこととしてもよい。

【0077】(3) 燃料電池装置の他の構成について: 上記第1実施例の燃料電池装置10では、エタノールタンク22を備え、ガソリンタンク20から攪拌部30を介して蒸発器32に供給されるガソリン量に応じて、所定量のエタノールをガソリンに加えることとしたが、原燃料あるいは水をタンクに貯蔵する際に、予め極性の高い液体有機化合物を所定の割合で混合しておくこととしてもよい。図3は、予めエタノールを混合したガソリンを貯蔵するタンクを備える第2実施例の燃料電池装置110の構成を表わす説明図である。燃料電池装置110は、第1実施例の燃料電池装置10とほぼ同様の構成を有しているため、共通する部材には同じ番号を付し、詳しい説明は省略する。

【0078】燃料電池装置110は、燃料電池装置10におけるガソリンタンク20に代えて、原燃料タンク120を備えており、エタノールタンク22は有していない。原燃料タンク120は、ガソリンに対して所定の割合(例えば10%)のエタノールを予め混合した原燃料を貯蔵するタンクである。例えば、燃料電池装置110を電気自動車に搭載し、燃料電池38を車両の駆動エネルギ源として用いる場合には、車両に燃料(ガソリン)を補給する際に、予めエタノールを混合したガソリンを原燃料タンク120に補給する、あるいは、所定量のエタノールを混合しつつガソリンを原燃料タンク120に補給することとすればよい。

【0079】このような燃料電池装置110によれば、 予めエタノールを混合したガソリンを用いるため、攪拌部30においてガソリンと水とをエマルジョン化して蒸発器32に供給する際に、エマルジョンを充分に安定に 保つことができる量のエタノールを常に混合しておくことができ、蒸発器32で気化して成る原燃料ガスにおい て、ガソリンと水との混合状態を安定して均一な状態に保つことができるため、第1実施例と同様の効果を奏することができる。また、第2実施例の燃料電池装置110によれば、予め所定の割合のエタノールをガソリンに対して混合した上で貯蔵しているため、動力要求、すなわち燃料電池38が必要とする燃料ガス量が変動する場合にも、ガソリンに加えるエタノール量を調節する必要がなく、常に所望の割合のエタノールを含むガソリンを攪拌部30に供給することが容易となる。

【0080】なお、上記した説明では、図3に示した燃料電池110において、エマルジョン安定化剤であるエタノールは予めガソリンに混合し、このエタノール添加ガソリンを原燃料タンク120に貯蔵することとしたが、エタノールを予め水に混合して水タンク24に貯蔵することも可能である。このような場合にも、攪拌部30で形成したエマルジョンを蒸発器32で気化させるまでのあいだ安定化するという上記した効果を得ることができる。さらに、エタノールなどのエマルジョン安定化剤を水に混合して貯蔵する場合には、エマルジョン安定化剤を水に混合して貯蔵する場合には、エマルジョン安定化剤を加えることで水タンク24に貯蔵する水の凝固点を低下させることができる。従って、寒冷地において燃料電池装置110を使用する場合にも、その運転休止中に水タンク24およびこれに接続する水の流路内で水が凍結して不都合を生じるのを防止することができる。

【0081】図3に示した燃料電池装置110においては、液体炭化水素の原燃料としてはガソリンを、極性の高い液体有機化合物としてはエタノールを用いることとしたが、第1実施例と同様に、種々の液体炭化水素およびエマルジョン安定化剤(液体有機化合物)を選択することができる。添加するエマルジョン安定化剤の量は、エマルジョンを形成してからこれを気化するまでの間、エマルジョンにおける混合状態を充分に均一に保つことができれば、原燃料の量に対して任意の混合割合を設定することができる。

【0082】上記第2実施例では、原燃料タンク120 に原燃料を補給する際、あるいは補給する以前に、原燃料に対してエマルジョン安定化剤を混合することとしたが、極性の高い液体有機化合物を本発明とは異なる目的で予め混合した液体炭化水素燃料がすでに知られており、このようなものを本発明に適用することも可能である。

【0083】例えば、オクタン価向上剤としてMTBE (Methyl Tertiary Butyl Ether)を数%混合したガソリンが知られているが、このようなガソリンを燃料電池装置110の原燃料タンク120に貯蔵して用いれば、上記MTBEをエマルジョン安定化剤として働かせ、既述した効果を得ることが可能である。すなわち、既述したように通常のガソリンは、極性の高い液体有機化合物の含有量が不十分であるため、上記第1および第2実施例ではエタノールなどを加えることとしたが、エマルジ

ョン形成から気化までの間、エマルジョンを充分に安定 化し得るだけの量の液体有機化合物を含有している炭化 水素系燃料を、図3に示した燃料電池装置110に適用 する場合には、別途液体有機化合物を添加することな く、既述した効果を得ることができる。

【0084】なお、既述した実施例では、改質器により 生成した水素リッチガスを燃料ガスとして供給する燃料 電池は、固体髙分子型燃料電池であることとしたが、異 なる種類の燃料電池に対して水素リッチガスを供給する こととしても良い。また、既述した実施例では、改質器 により生成した水素リッチガスを、一酸化炭素濃度の低 減や脱硫などの処理を経て、そのまま燃料電池に燃料ガ スとして供給する燃料電池装置を示したが、異なる構成 とすることも可能である。例えば、エマルジョン安定化 剤を原燃料に加える構成を備える改質装置において、水 蒸気改質反応を利用して原燃料から水素リッチガスを生 成した後、生成した水素リッチガスを所定の貯蔵部に一 旦貯蔵し、必要に応じて取り出すこととしたり、周知の 水素分離膜などを用いて水素リッチガスにおける水素純 度を高めたり、生成した水素リッチガスを、燃料電池で 発電に利用する燃料ガス以外の用途に用いることとして も良い。疎水性の液体炭化水素から水蒸気改質法により 水素を生成する装置であれば、異なる構成のものに対し ても適用可能であって、改質器において原燃料と水との 混合状態を所望の割合で安定化することによる既述した 効果を得ることができる。

【0085】以上本発明の実施例について説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々なる様態で実施し得ることは勿論である。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の好適な一実施例である燃料電池装置1 0の構成の概略を表わす説明図である。

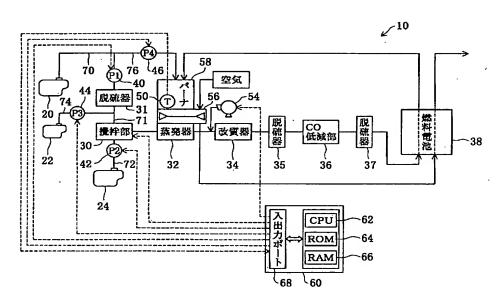
【図2】イソオクタンと水とのエマルジョンの安定化に 対するエタノールの影響を調べた結果を表わす。

【図3】第2実施例の燃料電池装置110の構成の概略 を表わす説明図である。

#### 【符号の説明】

- 10,110…燃料電池装置20…ガソリンタンク
- 22…エタノールタンク
- 24…水タンク
- 30…攪拌部
- 31, 35, 37…脱硫器
- 32…蒸発器
- 3 4…改質器
- 36…CO低減部
- 38…燃料電池.
- 40, 42, 44, 46…ポンプ
- 50…温度センサ
- 54…ブロワ
- 5 6 … 圧縮機
- 58…バーナ
- 60…制御部
- 62 ··· CPU
- 6 4 ··· R O M
- 6 6 ··· R A M
- 68…入出カポート
- 70, 71, 72, 74, 76…流路
- 120…原燃料タンク

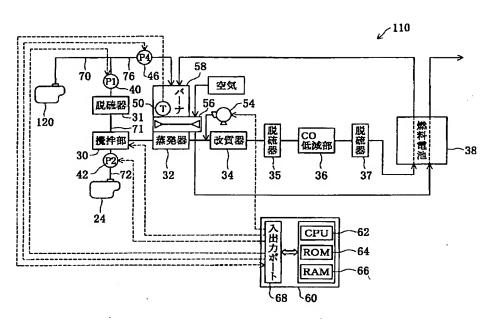
【図1】



【図2】

経過時間	A (エタノール10%添加)	B (茶象茶)
10秒	変化無し	油相分離開始(相厚 Imm)
20秒	変化無し	油相分離促進(相厚 3mm)
30秒	変化無し	ほぼ完全に油相分離(5mm)
60秒	上層白濁相が濃くなる	•
120秒	油相分離開始(相厚 1mm)	

【図3】



## フロントページの続き

(72) 発明者 山口 進

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動

車株式会社内

(72) 発明者 國武 和久

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動

車株式会社内

Fターム(参考) 4G040 EA03 EA06 EB03 EB32

5H026 AA06 HH05

5H027 AA06 BA01 BA16 BA17 BA19

BA20 BC12 CC06 KK42 MM08

MM13 MM14